

PCT COOPERATION TREATY

PCT

NOTIFICATION OF ELECTION

(PCT Rule 61.2)

From the INTERNATIONAL BUREAU

To:

Assistant Commissioner for Patents
 United States Patent and Trademark
 Office
 Box PCT
 Washington, D.C.20231
 ETATS-UNIS D'AMERIQUE

in its capacity as elected Office

| | |
|---|--|
| Date of mailing (day/month/year) 20 April 2000 (20.04.00) | |
| International application No. PCT/UA99/00017 | Applicant's or agent's file reference |
| International filing date (day/month/year) 25 August 1999 (25.08.99) | Priority date (day/month/year) 11 September 1998 (11.09.98) |
| Applicant PRILUTSKY, Emmanuil Volfovich et al | |

1. The designated Office is hereby notified of its election made:

☒ in the demand filed with the International Preliminary Examining Authority on:

15 March 2000 (15.03.00)

☐ in a notice effecting later election filed with the International Bureau on:

2. The election ☒ was
☐ was not

made before the expiration of 19 months from the priority date or, where Rule 32 applies, within the time limit under Rule 32.2(b).

BEST AVAILABLE COPY

| | |
|---|---|
| The International Bureau of WIPO 34, chemin des Colombettes 1211 Geneva 20, Switzerland | Authorized officer Olivia RANAIVOJAONA |
| Facsimile No.: (41-22) 740.14.35 | Telephone No.: (41-22) 338.83.38 |

TENT COOPERATION TREAT

PCT

**NOTIFICATION OF WITHDRAWAL
OF PRIORITY CLAIM**

(PCT Rule 90bis.3 and
Administrative Instructions, Section 415(a) and (b))

From the INTERNATIONAL BUREAU

To:

KUTSEVICH, Valery Ljudvikovich
ul.Polyarnaya, 13-81
Kiev, 254201
UKRAINE

| | |
|--|---|
| Date of mailing (day/month/year) 30 March 2001 (30.03.01) | IMPORTANT NOTIFICATION |
| Applicant's or agent's file reference | |
| International application No. PCT/UA99/00017 | International filing date (day/month/year) 25 August 1999 (25.08.99) |
| Applicant PRILUTSKY, Emmanuil Volfovich | |

- The applicant is hereby notified that the priority claim made in the international application has been withdrawn in accordance with a notice of withdrawal received from the applicant on:
09 February 2001 (09.02.01)

The attention of the applicant is drawn to the fact that the withdrawal of the priority claim will result in the re-calculation of time limits which have not already expired (see Rule 90bis.3(d)).
- ☐ In the case where multiple priorities have been claimed, the above action relates to the following priority claim(s):
- A copy of this notification has been sent to the receiving Office and to:
 - ☐ the International Searching Authority (where the international search report has not yet been issued)
 - ☒ the designated Offices (which have already been notified of the receipt of the record copy)
 - ☐ the International Preliminary Examining Authority

BEST AVAILABLE COPY

| | |
|--|--|
| The International Bureau of WIPO 34, chemin des Colombettes 1211 Geneva 20, Switzerland Facsimile No. (41-22) 740.14.35 | Authorized officer Beatriz LARGO Telephone No. (41-22) 338.83.38 |
|--|--|

PATENT COOPERATION TREATY

PCT

NOTIFICATION OF THE RECORDING
OF A CHANGE(PCT Rule 92bis.1 and
Administrative Instructions, Section 422)

From the INTERNATIONAL BUREAU

To:

KUTSEVICH, Valery Ljudvikovich
ul.Polyarnaya, 13-81
Kiev, 254201
UKRAINE

| | |
|--|---|
| Date of mailing (day/month/year) 04 février 2002 (04.02.02) | IMPORTANT NOTIFICATION |
| Applicant's or agent's file reference | |
| International application No. PCT/UA99/00017 | International filing date (day/month/year) 25 août 1999 (25.08.99) |

| | | |
|--|----------------------------|--------------------------|
| 1. The following indications appeared on record concerning: <input checked="" type="checkbox"/> the applicant <input checked="" type="checkbox"/> the inventor <input type="checkbox"/> the agent <input type="checkbox"/> the common representative | | |
| Name and Address PRILUTSKY, Oleg Volfovich ul.Semashko, 17-8 Kiev, 252142 Ukraine | State of Nationality UA | State of Residence UA |
| | Telephone No. | |
| | Facsimile No. | |
| | Teleprinter No. | |
| 2. The International Bureau hereby notifies the applicant that the following change has been recorded concerning: <input checked="" type="checkbox"/> the person <input type="checkbox"/> the name <input type="checkbox"/> the address <input type="checkbox"/> the nationality <input type="checkbox"/> the residence | | |
| Name and Address PRILUTSKY, Oleg Volfovich ul.Semashko, 17-8 Kiev, 252142 Ukraine | State of Nationality UA | State of Residence UA |
| | Telephone No. | |
| | Facsimile No. | |
| | Teleprinter No. | |
| 3. Further observations, if necessary: The above-mentioned person is now applicant/inventor for the United States of America only. | | |
| 4. A copy of this notification has been sent to: <input checked="" type="checkbox"/> the receiving Office <input type="checkbox"/> the designated Offices concerned <input type="checkbox"/> the International Searching Authority <input checked="" type="checkbox"/> the elected Offices concerned <input type="checkbox"/> the International Preliminary Examining Authority <input type="checkbox"/> other: | | |

| | |
|---|---|
| The International Bureau of WIPO 34, chemin des Colombettes 1211 Geneva 20, Switzerland Facsimile No.: (41-22) 740.14.35 | Authorized officer Beatriz LARGO Telephone No.: (41-22) 338.83.38 |
|---|---|

PATENT COOPERATION TREATY

10/069241

PCT

From the INTERNATIONAL BUREAU

NOTIFICATION OF THE RECORDING
OF A CHANGE(PCT Rule 92bis.1 and
Administrative Instructions, Section 422)

To:

KUTSEVICH, Valery Ljudvikovich
ul. Polyarnaya, 13-81
Kiev, 254201
UKRAINE

| | |
|--|---|
| Date of mailing (day/month/year) 17 April 2002 (17.04.02) | IMPORTANT NOTIFICATION |
| Applicant's or agent's file reference | |
| International application No. PCT/UA99/00017 | International filing date (day/month/year) 25 August 1999 (25.08.99) |

1. The following indications appeared on record concerning:

☒ the applicant ☐ the inventor ☐ the agent ☐ the common representative

Name and Address

PRILUTSKY, Emmanuil Volfovich
ul. Semashko, 17-8
Kiev, 252142
Ukraine

State of Nationality

FI

State of Residence

FI

Telephone No.

Facsimile No.

Teleprinter No.

2. The International Bureau hereby notifies the applicant that the following change has been recorded concerning:

☒ the person ☐ the name ☐ the address ☐ the nationality ☐ the residence

Name and Address

OY ALTIMECO LTD.
Kuutamokatu 8
FIN-02210 Espoo
Finland

State of Nationality

FI

State of Residence

FI

Telephone No.

Facsimile No.

Teleprinter No.

3. Further observations, if necessary:

The applicant/inventor in box 1 has assigned his rights to the applicant in box 2 for all designated States except the United States of America.

4. A copy of this notification has been sent to:

☒ the receiving Office ☐ the designated Offices concerned
☐ the International Searching Authority ☒ the elected Offices concerned
☐ the International Preliminary Examining Authority ☐ other:
The International Bureau of WIPO
34, chemin des Colombettes
1211 Geneva 20, Switzerland

Authorized officer

Beatriz LARGO

Facsimile No.: (41-22) 740.14.35

Telephone No.: (41-22) 338.83.38

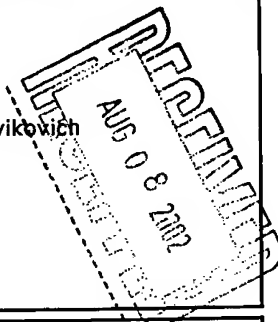
PATENT COOPERATION TREATY

PCT

NOTIFICATION OF THE RECORDING
OF A CHANGE(PCT Rule 92bis.1 and
Administrative Instructions, Section 422)

From the INTERNATIONAL BUREAU

To:

KUTSEVICH, Valery Ljudvikovich
ul. Polyarnaya, 13-81
Kiev, 254201
UKRAINE

| | |
|---|---|
| Date of mailing (day/month/year) 14 June 2002 (14.06.02) | IMPORTANT NOTIFICATION |
| Applicant's or agent's file reference | |
| International application No. PCT/UA99/00017 | International filing date (day/month/year) 25 August 1999 (25.08.99) |

| | |
|--|----------------------------|
| 1. The following indications appeared on record concerning: <input checked="" type="checkbox"/> the applicant <input checked="" type="checkbox"/> the inventor <input type="checkbox"/> the agent <input type="checkbox"/> the common representative | |
| Name and Address PRILUTSKY, Oleg Volfovich ul. Semashko, 17-8 Kiev, 252142 Ukraine | State of Nationality UA |
| | State of Residence UA |
| | Telephone No. |
| | Facsimile No. |
| 2. The International Bureau hereby notifies the applicant that the following change has been recorded concerning: <input type="checkbox"/> the person <input type="checkbox"/> the name <input type="checkbox"/> the address <input type="checkbox"/> the nationality <input type="checkbox"/> the residence | |
| Name and Address OY ALTIMECO LTD. Kuutamokatu 8 FIN-02210 Espoo Finland | State of Nationality UA |
| | State of Residence UA |
| | Telephone No. |
| | Facsimile No. |
| 3. Further observations, if necessary: The applicant/inventor in Box 1 has assigned his rights to the applicant in box 2 for all designated States except the United States of America. | |
| 4. A copy of this notification has been sent to: <input checked="" type="checkbox"/> the receiving Office <input type="checkbox"/> the designated Offices concerned <input type="checkbox"/> the International Searching Authority <input checked="" type="checkbox"/> the elected Offices concerned <input type="checkbox"/> the International Preliminary Examining Authority <input type="checkbox"/> other: | |

| | |
|---|-------------------------------------|
| The International Bureau of WIPO 34, chemin des Colombettes 1211 Geneva 20, Switzerland | Authorized officer Beatriz LARGO |
| Facsimile No.: (41-22) 740.14.35 | Telephone No.: (41-22) 338.83.38 |

PATENT COOPERATION TREATY

PCT NOTIFICATION OF TRANSMITTAL OF COPIES OF TRANSLATION OF THE INTERNATIONAL PRELIMINARY EXAMINATION REPORT

(PCT Rule 72.2)

From the INTERNATIONAL BUREAU

To:

KUTSEVICH, Valery Ljudvikovich
ul. Polyarnaya, 13-81
Kiev, 254201
UKRAINE

| | |
|---|--|
| Date of mailing (day/month/year) 07 May 2001 (07.05.01) | |
| Applicant's or agent's file reference | IMPORTANT NOTIFICATION |
| International application No. PCT/UA99/00017 | International filing date (day/month/year) 25 August 1999 (25.08.99) |
| Applicant PRILUTSKY, Emmanuil Volfovich et al | |

1. Transmittal of the translation to the applicant.

The International Bureau transmits herewith a copy of the English translation made by the International Bureau of the international preliminary examination report established by the International Preliminary Examining Authority.

2. Transmittal of the copy of the translation to the elected Offices.

The International Bureau notifies the applicant that copies of that translation have been transmitted to the following elected Offices requiring such translation:

EP, AT, AU, CA, CH, CN, FI, JP, KR, NO, NZ, PL, US


The following elected Offices, having waived the requirement for such a transmittal at this time, will receive copies of that translation from the International Bureau only upon their request:

AP, EA, AL, AM, AZ, BA, BB, BG, BR, BY, CU, CZ, DE, DK, EE, ES, GB, GE, GH, GM, HU, ID, IL, IN, IS, KE, KG, KP, KZ, LC, LK, LR, LS, LT, LU, LV, MD, MG, MK, MN, MW, MX, PT, RO, RU, SD, SE, SG, SI, SK, SL, TJ, TM, TR, TT, UA, UG, UZ, VN, YU, ZW, OA

3. Reminder regarding translation into (one of) the official language(s) of the elected Office(s).

The applicant is reminded that, where a translation of the international application must be furnished to an elected Office, that translation must contain a translation of any annexes to the international preliminary examination report.

It is the applicant's responsibility to prepare and furnish such translation directly to each elected Office concerned (Rule 74.1). See Volume II of the PCT Applicant's Guide for further details.

| | |
|--|--|
| The International Bureau of WIPO 34, chemin des Colombettes 1211 Geneva 20, Switzerland Facsimile No. (41-22) 740.14.35 | Authorized officer <div style="text-align: center;"> Odile ALIU  </div> Telephone No. (41-22) 338.83.38 |
|--|--|

PATENT COOPERATION TREATY

PCT

From the INTERNATIONAL BUREAU

NOTICE INFORMING THE APPLICANT OF THE
COMMUNICATION OF THE INTERNATIONAL
APPLICATION TO THE DESIGNATED OFFICES

(PCT Rule 47.1(c), first sentence)

To:

KUTSEVICH, Valery Ljudvikovich
ul. Polyarnaya, 13-81
Kiev, 254201
UKRAINE

| | | |
|--|---|--|
| Date of mailing (day/month/year) 23 March 2000 (23.03.00) | | |
| Applicant's or agent's file reference | | IMPORTANT NOTICE |
| International application No. PCT/UA99/00017 | International filing date (day/month/year) 25 August 1999 (25.08.99) | Priority date (day/month/year) 11 September 1998 (11.09.98) |
| Applicant PRILUTSKY, Emmanuil Volfovich et al | | |

1. Notice is hereby given that the International Bureau has communicated, as provided in Article 20, the international application to the following designated Offices on the date indicated above as the date of mailing of this Notice:

AU,CN,JP,KP,KR,US

In accordance with Rule 47.1(c), third sentence, those Offices will accept the present Notice as conclusive evidence that the communication of the international application has duly taken place on the date of mailing indicated above and no copy of the international application is required to be furnished by the applicant to the designated Office(s).

2. The following designated Offices have waived the requirement for such a communication at this time:

AL,AM,AP,AT,AZ,BA,BB,BG,BR,BY,CA,CH,CU,CZ,DE,DK,EA,EE,EP,ES,FI,GB,GE,GH,GM,HU,ID,
IL,IN,IS,KE,KG,KZ,LC,LK,LR,LS,LT,LU,LV,MD,MG,MK,MN,MW,MX,NO,NZ,OA,PL,PT,RO,RU,SD,
SE,SG,SI,SK,SL,TJ,TM,TR,TT,UA,UG,UZ,VN,YU,ZW

The communication will be made to those Offices only upon their request. Furthermore, those Offices do not require the applicant to furnish a copy of the international application (Rule 49.1(a-bis)).

3. Enclosed with this Notice is a copy of the international application as published by the International Bureau on 23 March 2000 (23.03.00) under No. WO 00/15403

REMINDER REGARDING CHAPTER II (Article 31(2)(a) and Rule 54.2)

If the applicant wishes to postpone entry into the national phase until 30 months (or later in some Offices) from the priority date, a demand for international preliminary examination must be filed with the competent International Preliminary Examining Authority before the expiration of 19 months from the priority date.

It is the applicant's sole responsibility to monitor the 19-month time limit.

Note that only an applicant who is a national or resident of a PCT Contracting State which is bound by Chapter II has the right to file a demand for international preliminary examination.

REMINDER REGARDING ENTRY INTO THE NATIONAL PHASE (Article 22 or 39(1))

If the applicant wishes to proceed with the international application in the national phase, he must, within 20 months or 30 months, or later in some Offices, perform the acts referred to therein before each designated or elected Office.

For further important information on the time limits and acts to be performed for entering the national phase, see the Annex to Form PCT/IB/301 (Notification of Receipt of Record Copy) and Volume II of the PCT Applicant's Guide.

| | |
|---|------------------------------------|
| The International Bureau of WIPO 34, chemin des Colombettes 1211 Geneva 20, Switzerland | Authorized officer J. Zahra |
| Facsimile No. (41-22) 740.14.35 | Telephone No. (41-22) 338.83.38 |

Translation

PATENT COOPERATION TREATY

PCT

INTERNATIONAL PRELIMINARY EXAMINATION REPORT

(PCT Article 36 and Rule 70)

| | | |
|---|---|--|
| Applicant's or agent's file reference | FOR FURTHER ACTION See Notification of Transmittal of International Preliminary Examination Report (Form PCT/IPEA/416) | |
| International application No. PCT/UA99/00017 | International filing date (day/month/year) 25 August 1999 (25.08.99) | Priority date (day/month/year) 11 September 1998 (11.09.1998) |
| International Patent Classification (IPC) or national classification and IPC C10G 1/10 | | |
| Applicant PRILUTSKY, Emmanuil Volfovich | | |

| |
|--|
| 1. This international preliminary examination report has been prepared by this International Preliminary Examining Authority and is transmitted to the applicant according to Article 36. |
| 2. This REPORT consists of a total of <u>3</u> sheets, including this cover sheet. <input type="checkbox"/> This report is also accompanied by ANNEXES, i.e., sheets of the description, claims and/or drawings which have been amended and are the basis for this report and/or sheets containing rectifications made before this Authority (see Rule 70.16 and Section 607 of the Administrative Instructions under the PCT). These annexes consist of a total of _____ sheets. |
| 3. This report contains indications relating to the following items: I <input checked="" type="checkbox"/> Basis of the report II <input type="checkbox"/> Priority III <input type="checkbox"/> Non-establishment of opinion with regard to novelty, inventive step and industrial applicability IV <input type="checkbox"/> Lack of unity of invention V <input checked="" type="checkbox"/> Reasoned statement under Article 35(2) with regard to novelty, inventive step or industrial applicability; citations and explanations supporting such statement VI <input type="checkbox"/> Certain documents cited VII <input type="checkbox"/> Certain defects in the international application VIII <input type="checkbox"/> Certain observations on the international application |

| | |
|--|--|
| Date of submission of the demand 15 March 2000 (15.03.00) | Date of completion of this report 25 December 2000 (25.12.2000) |
| Name and mailing address of the IPEA/RU | Authorized officer |
| Facsimile No. | Telephone No. |

INTERNATIONAL PRELIMINARY EXAMINATION REPORT

International application No.

PCT/UA99/00017

I. Basis of the report

1. This report has been drawn on the basis of *(Replacement sheets which have been furnished to the receiving Office in response to an invitation under Article 14 are referred to in this report as "originally filed" and are not annexed to the report since they do not contain amendments.)*:

- ☒ the international application as originally filed.
- ☐ the description, pages _____, as originally filed,
pages _____, filed with the demand,
pages _____, filed with the letter of _____,
pages _____, filed with the letter of _____.
- ☐ the claims, Nos. _____, as originally filed,
Nos. _____, as amended under Article 19,
Nos. _____, filed with the demand,
Nos. _____, filed with the letter of _____,
Nos. _____, filed with the letter of _____.
- ☐ the drawings, sheets/fig _____, as originally filed,
sheets/fig _____, filed with the demand,
sheets/fig _____, filed with the letter of _____,
sheets/fig _____, filed with the letter of _____.

2. The amendments have resulted in the cancellation of:

- ☐ the description, pages _____
- ☐ the claims, Nos. _____
- ☐ the drawings, sheets/fig _____

3. ☐ This report has been established as if (some of) the amendments had not been made, since they have been considered to go beyond the disclosure as filed, as indicated in the Supplemental Box (Rule 70.2(c)).

4. Additional observations, if necessary:

INTERNATIONAL PRELIMINARY EXAMINATION REPORT

International application No.

PCT/UA 99/00017

V. Reasoned statement under Article 35(2) with regard to novelty, inventive step or industrial applicability; citations and explanations supporting such statement

1. Statement

| | | | |
|-------------------------------|--------|-----|-----|
| Novelty (N) | Claims | 1-9 | YES |
| | Claims | | NO |
| Inventive step (IS) | Claims | 1-9 | YES |
| | Claims | | NO |
| Industrial applicability (IA) | Claims | 1-9 | YES |
| | Claims | | NO |

2. Citations and explanations

The following documents were referred to:

SU 1698258 A1 (D1)

EP 0863197 A1 (D2)

EP 0535253 A1 (D3)

EP 0612828 A1 (D4)

D1 describes a catalyst used in the low-temperature pyrolysis of hydrocarbon-containing polymer materials, in particular of rubber waste materials, which includes a finely divided iron-containing component and a metal-containing component.

D2 describes catalytic cracking of pyrolysis products of rubber waste materials. Moreover, the catalyst has an iron-containing component on a silicon or aluminium carrier.

D3 and D4 describe catalysts used in low-temperature pyrolysis and containing a metal-containing component.

The catalyst described in D1 is the closest to the catalyst claimed.

The invention as per Claim 1 differs from that known from D1 in that its iron-containing component is a carbon-iron component in the form of microscopic particles of carbon and ultradispersed iron particles, and its metal-containing component is a metal-carbon component. Said metal-carbon component is obtained as a product of the stripping and pyrolysis of a dispersion that comprises at least one salt of a metal from the group VIII in the periodic table which is capable of decay upon heating in order to form an oxide, wherein said metal is selected from the group comprising iron,

INTERNATIONAL PRELIMINARY EXAMINATION REPORT

International application No.

PCT/UA 99/00017

nickel and cobalt. The dispersion further includes a carbohydrate and a highly volatile solvent.

The said characterising features are not disclosed in the prior art, in particular documents D2 to D4.

Thus Claims 1 to 9 meet the criteria of novelty and inventive step.

ДОГОВОР О ПАТЕНТНОЙ КООПЕРАЦИИ

РСТ

ЗАКЛЮЧЕНИЕ МЕЖДУНАРОДНОЙ ПРЕДВАРИТЕЛЬНОЙ ЭКСПЕРТИЗЫ

(статья 36 и правило 70 РСТ)

| | | |
|---|---|---|
| № дела заявителя или агента: - | Для дальнейших действий см. уведомление о пересылке заключения международной предварительной экспертизы (форма РСТ/ІРЕА/416). | |
| Номер международной заявки: РСТ/UA 99/00017 | Дата международной подачи: 25 августа 1999 (25.08.1999) | Самая ранняя дата приоритета: 11 сентября 1998 (11.09.1998) |
| Международная патентная классификация (МПК-7): C10G 1/10 | | |
| Заявитель: ПРИЛУЦКИЙ Эммануил Вольфович и др. | | |
| <p>1. Данное заключение международной предварительной экспертизы подготовлено настоящим Органом международной предварительной экспертизы и направлено заявителю в соответствии со статьей 36 РСТ.</p> <p>2. Данное заключение содержит всего <u>3</u> листа, включая данный общий лист</p> <p><input type="checkbox"/> Данное заключение сопровождается также ПРИЛОЖЕНИЯМИ, т.е. листами описания, формулы и/или чертежей, которые были изменены и являются основой для данного заключения и/или листами, содержащими исправления, представленные настоящему Органу (см.Правило 70.16 и пункт 607 Административной инструкции РСТ).</p> <p>Упомянутые приложения содержат всего _____ листов</p> <p>3. Данное заключение содержит информацию, относящуюся к следующим разделам</p> <p>I <input checked="" type="checkbox"/> Основа заключения</p> <p>II <input type="checkbox"/> Приоритет</p> <p>III <input type="checkbox"/> Отсутствие заключения относительно новизны, изобретательского уровня и промышленной применимости</p> <p>IV <input type="checkbox"/> Нарушение единства изобретения</p> <p>V <input checked="" type="checkbox"/> Утверждение относительно новизны, изобретательского уровня и промышленной применимости; ссылки и пояснения в обоснование утверждения (Статья 35(2))</p> <p>VI <input type="checkbox"/> Некоторые цитируемые документы</p> <p>VII <input type="checkbox"/> Некоторые дефекты международной заявки</p> <p>VIII <input type="checkbox"/> Некоторые замечания, касающиеся международной заявки</p> | | |
| Дата представления требования: 15 марта 2000 (15.03.2000) | | Дата подготовки заключения: 25 декабря 2000 (25.12.2000) |
| Наименование и адрес Органа международной предварительной экспертизы: Федеральный институт промышленной собственности Россия, 121858, Москва, Бережковская наб., 30-1 Факс: 243-3337, телетайп: 114818 ПОДАЧА | | Уполномоченное лицо: Л.Реутова Телефон №: (095)240-2591 |

Форма РСТ/ІРЕА/409 (общий лист) (июль 1998)

ЗАКЛЮЧЕНИЕ МЕЖДУНАРОДНОЙ ПРЕДВАРИТЕЛЬНОЙ ЭКСПЕРТИЗЫ

Международная заявка №
РСТ/UA 99/00017

I. Основа заключения

1. Элементы международной заявки:*

☒ международная заявка в том виде, в котором она была подана

☐ описание:

_____ страницы _____ первоначально поданные

_____ страницы _____ поданные вместе с требованием,

_____ страницы _____ поданные с письмом от _____

☐ формула изобретения:

_____ страницы _____ первоначально поданные

_____ страницы _____ поданные (вместе с объяснениями) по Статье 19

_____ страницы _____ поданные вместе с требованием,

_____ страницы _____ поданные с письмом от _____

☐ чертежи:

_____ страницы _____ первоначально поданные,

_____ страницы _____ поданные вместе с требованием,

_____ страницы _____ поданные с письмом от _____

☐ часть описания, касающаяся перечня последовательностей:

_____ страницы _____ первоначально поданные,

_____ страницы _____ поданные вместе с требованием,

_____ страницы _____ поданные с письмом от _____

2. Все отмеченные выше элементы были поданы в настоящий Орган или представлены на языке, на котором была подана международная заявка, если иное не указано в данном пункте.

Эти элементы были поданы в настоящий Орган или представлены на следующем языке _____

который является:

☐ языком перевода, представленного для целей международного поиска (Правило 23.1 (в)).

☐ языком публикации международной заявки (Правило 48.3 (в)).

☐ языком перевода, представленного для целей международной предварительной экспертизы (Правило 55.2 и/или 55.3).

3. Относительно любой последовательности нуклеотидов и/или аминокислот, содержащейся в международной заявке, международная предварительная экспертиза была проведена на основе перечня последовательностей:

☐ содержащегося в международной заявке в письменной форме.

☐ поданного вместе с международной заявкой в машиночитаемой форме.

☐ представленного позже в настоящий Орган в письменной форме.

☐ представленного позже в настоящий Орган в машиночитаемой форме.

☐ Представлено утверждение о том, что позже представленный перечень последовательностей в письменной форме не выходит за пределы раскрытого в международной заявке в том виде, в каком она была подана.

☐ Представлено утверждение о том, что информация, записанная в машиночитаемой форме, идентична перечню последовательностей в письменной форме.

4. ☐ Изменения привели к изъятию:

☐ страниц описания _____

☐ пунктов формулы №№ _____

☐ страницы/фиг. чертежей _____

5. ☐ Настоящее заключение составлено без учета (некоторых) изменений, так как они выходят за рамки первоначально поданных материалов заявки, как указано на дополнительном листе (Правило 70.2(c))**

* Заменяющие листы, которые были представлены в Получающее ведомство в ответ на его предложение в соответствии со Статьей 14, расцениваются в данном заключении как "первоначально поданные" и не прикладываются к заключению, поскольку они не содержат исправлений (Правило 70.16 и 70.17)

** Любой заменяющий лист, содержащий такие изменения, должен быть рассмотрен в соответствии с пунктом 1 и приложен к данному заключению.

ЗАКЛЮЧЕНИЕ ЭКСПЕРТИЗЫ

Международная заявка №

PCT/UA 99/00017

IV. Утверждение в соответствии со ст. 35(2) в отношении новизны, изобретательского уровня и промышленной применимости; ссылки и пояснения, подкрепляющие такое утверждение

1. Утверждение

| | | | |
|--------------------------------|--------|-----|-----|
| Новизна (N) | Пункты | 1-9 | ДА |
| | Пункты | | НЕТ |
| Изобретательский уровень (IS) | Пункты | 1-9 | ДА |
| | Пункты | | НЕТ |
| Промышленная применимость (IA) | Пункты | 1-9 | ДА |
| | Пункты | | НЕТ |

При составлении заключения были использованы следующие ссылки:

SU 1698258 A1 (D1)

EP 0863197 A1 (D2)

EP 0535253 A1 (D3)

EP 0612828 A1 (D4)

В Д1 описан катализатор низкотемпературного пиролиза углеводородсодержащих полимерных материалов, в частности, отходов резины, включающем мелкодисперсным железосодержащий компонент и металлосоодержащий компонент.

В Д2 описан каталитический крекинг пиролиза резиновых отходов. При этом катализатор представляет собой железосодержащий компонент на силиконовой или алюминиевой подложке.

В Д3 и Д4 описаны катализаторы низкотемпературного пиролиз и включающие металлосоодержащий компонент.

Наиболее близким к заявленному катализатору является катализатор, описанный в Д1.

Изобретение по п.1 отличается от известного из Д1 тем, что в качестве железосодержащего компонента он содержит железоуглеродный компонент в виде микроскопических частиц углерода и ультрадисперсных частиц железа, а в качестве металлосоодержащего компонента - металлоуглеродный компонент, полученный как продукт упаривания и пиролиза дисперсии, содержащей по меньшей мере одну разлагающуюся при нагреве с образования оксида соль металла VIII группы периодической системы, который выбран из группы железа, никеля и кобальта, углеводов и легколетучий сольвент.

Указанные отличительные признаки не раскрыты в предшествующем уровне техники, в частности, в документах Д2 - Д4.

Таким образом, изобретение по п.п. 1-9 соответствует критериям новизны и изобретательского уровня.

РСТВСЕМИРНАЯ ОРГАНИЗАЦИЯ
ИНТЕЛЛЕКТУАЛЬНОЙ СОБСТВЕННОСТИ
Международное бюроМЕЖДУНАРОДНАЯ ЗАЯВКА, ОПУБЛИКОВАННАЯ В СООТВЕТСТВИИ
С ДОГОВОРом О ПАТЕНТНОЙ КООПЕРАЦИИ (РСТ)

| | | |
|--|-----------|---|
| (51) Международная классификация изобретения⁷: B29B | A2 | (11) Номер международной публикации: WO 00/15403 (43) Дата международной публикации: 23 марта 2000 (23.03.00) |
| (21) Номер международной заявки: PCT/UA99/00017 (22) Дата международной подачи: 25 августа 1999 (25.08.99) (30) Данные о приоритете: 98094786 11 сентября 1998 (11.09.98) UA (71)(72) Заявители и изобретатели: ПРИЛУЦКИЙ Эммануил Вольфович [UA/UA]; 252142 Киев, ул. Семашко, д. 17, кв. 8 (UA) [PRILUTSKY, Emmanuil Volfovich, Kiev (UA)]. ПРИЛУЦКИЙ Олег Вольфович [UA/UA]; 252142 Киев, ул. Семашко, д. 17, кв. 8 (UA) [PRILUTSKY, Oleg Volfovich, Kiev (UA)]. (74) Агент: КУЦЕВИЧ Валерий Людвинович; 254201 Киев, ул. Полярная, д. 13, кв. 81 (UA) [KUTSEVICH, Valery Ljudvikovich, Kiev (UA)]. | | (81) Указанные государства: AL, AM, AT, AU, AZ, BA, BB, BG, BR, BY, CA, CH, CN, CU, CZ, DE, DK, EE, ES, FI, GB, GE, GH, GM, HU, ID, IL, IN, IS, JP, KE, KG, KP, KR, KZ, LC, LK, LR, LS, LT, LU, LV, MD, MG, MK, MN, MW, MX, NO, NZ, PL, PT, RO, RU, SD, SE, SG, SI, SK, SL, TJ, TM, TR, TT, UA, UG, US, UZ, VN, YU, ZW, евразийский патент (AM, AZ, BY, KG, KZ, MD, RU, TJ, TM), европейский патент (AT, BE, CH, CY, DE, DK, ES, FI, FR, GB, GR, IE, IT, LU, MC, NL, PT, SE), патент ARIPO (GH, GM, KE, LS, MW, SD, SL, SZ, UG, ZW), патент OAPI (BF, BJ, CF, CG, CI, CM, GA, GN, GW, ML, MR, NE, SN, TD, TG). Опубликована <i>Без отчёта о международном поиске и с повторной публикацией по получении отчёта.</i> |
| (54) Title: CATALYST FOR THE LOW-TEMPERATURE PYROLYSIS OF HYDROCARBON-CONTAINING POLYMER MATERIALS | | |
| (54) Название изобретения: КАТАЛИЗАТОР НИЗКОТЕМПЕРАТУРНОГО ПИРОЛИЗА УГЛЕВОДОРОДОСодержащих ПОЛИМЕРНЫХ МАТЕРИАЛОВ | | |
| (57) Abstract <p>The present invention relates to a catalyst used in the low-temperature pyrolysis of hydrocarbon-containing polymer materials, said catalyst being mainly intended for use in the recycling of rubber waste materials. The catalyst is prepared from a carbon-iron component in the form of microscopic carbon particles and ultra-dispersed iron particles. In order to increase the yield of light hydrocarbon fractions in the condensate and to bind substantially completely the sulphur in the products of the rubber pyrolysis, the catalyst further contains a metal-carbon component. This component consists of the product from the stripping and the pyrolysis of a dispersion that comprises at least one salt of a metal from the group VIII in the periodic table which is capable of decay upon heating in order to form an oxide, wherein said metal is selected from the group comprising iron, nickel and cobalt. The dispersion further includes a carbohydrate as well as a highly volatile solvent.</p> | | |

КАТАЛИЗАТОР НИЗКОТЕМПЕРАТУРНОГО ПИРОЛИЗА УГЛЕВОДОРОДСОДЕРЖАЩИХ ПОЛИМЕРНЫХ МАТЕРИАЛОВ предназначен преимущественно для переработки отходов резины. Он изготовлен на основе железуглеродного компонента в виде микроскопических частиц углерода и ультрадисперсных частиц железа. Для повышения выхода в конденсат легких фракций углеводородов и практически полного связывания серы в продуктах пиролиза резины катализатор дополнительно содержит металлоуглеродный компонент, полученный как продукт упаривания и пиролиза дисперсии, содержащей по меньшей мере одну разлагающуюся при нагреве с образованием оксида соль металла VIII группы Периодической системы, который выбран из группы, состоящей из железа, никеля и кобальта, углевод и легколетучий сольвент.

ИСКЛЮЧИТЕЛЬНО ДЛЯ ЦЕЛЕЙ ИНФОРМАЦИИ

Коды, используемые для обозначения стран-членов РСТ на титульных листах брошюр, в которых публикуются международные заявки в соответствии с РСТ.

| | | | | | |
|----|-----------------------------------|----|--|----|---------------------------|
| AL | Албания | GE | Грузия | MR | Мавритания |
| AM | Армения | GH | Гана | MW | Малави |
| AT | Австрия | GN | Гвинея | MX | Мексика |
| AU | Австралия | GR | Греция | NE | Нигер |
| AZ | Азербайджан | HU | Венгрия | NL | Нидерланды |
| BA | Босния и Герцеговина | IE | Ирландия | NO | Норвегия |
| BB | Барбадос | IL | Израиль | NZ | Новая Зеландия |
| BE | Бельгия | IS | Исландия | PL | Польша |
| BF | Буркина-Фасо | IT | Италия | PT | Португалия |
| BG | Болгария | JP | Япония | RO | Румыния |
| BJ | Бенин | KE | Кения | RU | Российская Федерация |
| BR | Бразилия | KG | Киргизстан | SD | Судан |
| BY | Беларусь | KP | Корейская Народно-Демократическая Республика | SE | Швеция |
| CA | Канада | KR | Республика Корея | SG | Сингапур |
| CF | Центрально-Африканская Республика | KZ | Казахстан | SI | Словения |
| CG | Конго | LC | Сент-Люсия | SK | Словакия |
| CH | Швейцария | LI | Лихтенштейн | SN | Сенегал |
| CI | Кот-д'Ивуар | LK | Шри Ланка | SZ | Свазиленд |
| CM | Камерун | LR | Либерия | TD | Чад |
| CN | Китай | LS | Лесото | TG | Того |
| CU | Куба | LT | Литва | TJ | Таджикистан |
| CZ | Чешская Республика | LU | Люксембург | TM | Туркменистан |
| DE | Германия | LV | Латвия | TR | Турция |
| DK | Дания | MC | Монако | TT | Тринидад и Тобаго |
| EE | Эстония | MD | Республика Молдова | UA | Украина |
| ES | Испания | MG | Мадагаскар | UG | Уганда |
| FI | Финляндия | MK | Бывшая югославская Республика Македония | US | Соединенные Штаты Америки |
| FR | Франция | ML | Мали | UZ | Узбекистан |
| GA | Габон | MN | Монголия | VN | Вьетнам |
| GB | Великобритания | | | YU | Югославия |
| | | | | ZW | Зимбабве |

КАТАЛИЗАТОР НИЗКОТЕМПЕРАТУРНОГО ПИРОЛИЗА УГЛЕВОДОРОДСОДЕРЖАЩИХ ПОЛИМЕРНЫХ МАТЕРИАЛОВ

Область техники

Изобретение относится к качественному и количественному составу катализаторов низкотемпературного пиролиза углеводородсодержащих полимерных материалов, преимущественно отходов резины.

Уровень техники

Здесь и далее:

термином "углеводородсодержащие полимерные материалы" обозначены способные к набуханию в органических растворителях преимущественно композиционные материалы, которые содержат связующие, полученные полимеризацией или сополимеризацией алкенов, алкадиенов, алкатриенов, циклоалкенов, циклоалкадиенов и циклоалкатриенов и/или их производных как в чистом виде, так и с применением сшивающих агентов, и обычно трудноудаляемые наполнители, а предпочтительно обозначена резина на основе вулканизованного натурального и/или синтетического каучука;

термином "отходы резины" обозначены произвольные по конструкции, исходным размерам и назначению изношенные резино-технические изделия.

Специалистам ясно, что отходы резины являются наиболее массовым видом углеводородсодержащих полимерных материалов. Поэтому всё, что далее будет сказано применительно к отходам резины, может быть сказано и об иных способных к набуханию в органических растворителях углеводородсодержащих полимерных материалах. Специалистам также ясно, что отработанные шины пневматических колёс произвольных транспортных средств и, в особен-

ности, шины с металлическим кордом (далее сокращенно - металлокордом) ныне являются основным источником отходов резины. Поэтому всё, что далее будет сказано применительно к резине, которую содержат отработанные шины, может быть сказано и об иных отходах резины.

Общеизвестно, что отходы резины могут служить источником ценных вторичных ресурсов. Однако их извлечению препятствуют высокая прочность химических связей в макромолекулах вулканизированных каучуков и трудность отделения резины от арматуры, обычно присутствующей в резинотехнических изделиях. Кроме того, большинство известных методов и средств деструкции резины опасны из-за существенного загрязнения окружающей среды соединениями серы, канцерогенной сажей и некоторыми другими токсичными веществами.

Также общеизвестно, что не подлежащие восстановлению шины и, в особенности, шины с металлокордом являются одним из наиболее серьёзных загрязнителей природной среды даже в непереработанном виде. Так, только в США в последние 10 лет ежегодно изнашиваются около 250 миллионов шин, а их общее количество на свалках перевалило за 3 миллиарда. Поэтому проблема избавления от отработанных шин ощущается тем острее, чем более экономически развита какая-либо страна и чем меньше её территория.

Применительно к шинам с текстильным кордом, механическое дробление и измельчение которых энергетически и экологически приемлемо, указанная проблема решалась и доныне нередко решается:

либо путём механической же сепарации измельчённых шин с получением отдельно утилизируемых резиновой крошки и целлю-

лососодержащих волокнистых материалов (см., например, US Patent 1,607,291, 1926 г.),

либо деполимеризацией резины, например: в паровых автоклавах под давлением (US Patent 2,447,732), или в аппаратах пиролиза под вакуумом (US Patent 4,740,270) и др.

Применительно же к отработанным шинам с металлокордом чисто механическое дробление цельных шин и измельчение кусков при температуре окружающей среды энергетически невыгодны.

Ещё недавно проблему избавления от таких шин в ряде стран частично решали экологически крайне опасным путем - сжиганием (см., например, статью "Tire Recycling Plant Tire Up" в журнале "Modern Tire Dealer", 1987, №8, с.6). При этом металлокорд превращался в ржавчину неопределённого состава, практически непригодную для переработки без существенных затрат на сбор, доставку и подготовку для введения в металлургический процесс.

Указанные недостатки исключены в процессах, которые предусматривают поэтапное механическое измельчение шин с по меньшей мере однократным замораживанием.

Так, известны процессы, включающие обрезку бортов шин, предварительное дробление обрезанных шин на куски толщиной обычно около 3 см и:

либо размол кусков при температуре окружающей среды, магнитную сепарацию металла, фракционирование частиц резины на ситах с выделением товарной мелкой крошки и зёрен с линейными размерами предпочтительно 2-7 (но не более 15) мм, которые замораживают в жидком азоте и дополнительно размалывают с получением резиновой крошки с линейными размерами частиц 0,2-2,0 мм ("Gummibereitung", 1987, Bd.63, №10, S.102-104);

либо замораживание кусков перед размолом (см. там же S.97-100, или US Patent 5,385,307) с последующей сепарацией металла и фракционированием частиц резины по величине.

5 При этом экобезопасность и высокое качество целевых продуктов разрушения шин достигнуты ценой низкой производительности и высоких удельных энергозатрат. Поэтому практическое применение таких процессов ограничено.

10 Электротермическое отделение металлокорда от резины согласно заявке DE 2900655 требует предварительной обрезки бортов шин и эффективно лишь тогда, когда кордная проволока пронизывает резину насквозь от борта до борта. В иных случаях невозможны ни разогрев всей массы металлокорда до температуры термодеструкции резины, ни выжигание всех её слоев, которые прилегают к кордной проволоке. Кроме того, указанный способ приводит к вы-

15 бросу в атмосферу токсичных продуктов термодеструкции резины.

Индукционный нагрев металлокорда (см., например: заявку DE 3911082; заявку на Европатент 0 478 774) исключает потребность в обрезке бортов, но увеличивает выход токсичных продуктов термодеструкции резины.

20 Электроимпульсное разрушение кордной проволоки (RU Patent 2050287) основано на разряде на металлокорд конденсаторной батареи или накопительной реактивной LC-цепи. Для этого процесса характерны кратковременное и с высокой плотностью тепловой мощности выделение тепла по границам кристаллических зёрен металла и, следовательно, взрывной характер разрушения кордной

25 проволоки. При этом значительная часть мелких частиц металла вылетает из резины, разрывая её на разные по величине куски.

Будучи экологически безопасен, этот процесс при любом подводе энергии к металлокорду не обеспечивает эффективного разде-

ления металла и резины, а его практическое применение затруднено следующими обстоятельствами:

5 во-первых, из-за неровной обрезки бортов и/или из-за уже отмеченного выше расположения заметной части кордных проволок в толще резины между конденсаторной батареей и металлокордом не всегда может быть установлен надёжный контакт, а потому обычно не удастся обеспечить полное разрушение кордной проволоки, не говоря уже о выбросе всех металлических частиц из массы резины.

10 во-вторых, электромагнитная (трансформаторная) передача энергии от реактивной LC-цепи на кордную проволоку тем менее эффективна, чем больше масса (и индуктивность) заключенного в разрушаемой шине металлокорда.

15 Эффективное с точки зрения чистоты получаемых продуктов и экологически безопасное отделение резины от металлокорда при разрушении цельных отработанных шин произвольных типоразмеров в принципе возможно светогидравлическим ударом при подаче мощного лазерного импульса в жидкость, окружающую механически растянутую шину (см. публикацию WO 97/44171 от 27.11.97 Международной заявки PCT/UA96/00011). В таких условиях резина оказы-
20 зывается хрупкой при комнатной температуре и полностью отваливается от металлокорда, который легко поддается металлургической утилизации.

25 Однако к.п.д. такого процесса вряд ли превысит 1% из-за низкого (обычно не более 5 %) к.п.д. лазеров, что исключает его применение на практике.

Поэтому предпочтительны такие способы и средства переработки шин, особенно с металлокордом, которые исключали бы потребность в каком бы то ни было предварительном отделении резины от арматуры изношенных резинотехнических изделий и позво-

ляли получать из отходов резины набор коммерчески ценных вторичных продуктов, а выделенную попутно арматуру утилизировать практически без дополнительной обработки.

5 Большинство таких процессов основано на низкотемпературном (не более 500°C, а обычно в интервале 200-400 °C) каталитическом пиролизе отходов резины, для осуществления которых даже крупные шины с металлокордом могут быть обычно разрезаны всего на несколько крупных кусков.

10 Режимы, в частности температура и давление, и результаты каталитического пиролиза отходов резины существенно зависят от используемых катализаторов. Важнейшим показателем их качества служит активность, которая может быть оценена по их удельному расходу в расчёте на единицу массы пиролизуемых отходов, по минимально допустимым температуре и давлению пиролиза, по степени конверсии полимерной органической составляющей в низко-

15 молекулярные продукты, по качественному составу таких продуктов, по их соотношению в смеси и пригодности для последующего использования (по возможности, с минимальной дополнительной обработкой перед продажей, или вообще без таковой).

20 Например, из US Patent 3,996,022 известен катализатор пиролиза в виде сплава галогенидов типа хлорида цинка и хлорида олова, который при температуре более 300°C и избыточном давлении позволяет преобразовывать отходы резины в смесь газообразных углеводородов, моторное топливо с низким содержанием серы и

25 твёрдый углеродистый остаток.

Удельный расход этого катализатора весьма велик, процесс с его применением протекает в довольно жёстких условиях, а получаемый в больших количествах твёрдый остаток, пригодный только

как заменитель топливного угля, лишь с трудом можно извлечь из аппарата для пиролиза.

5 Сходные результаты удаётся получить применением порошкообразного катализатора на основе соединения (обычно оксида) железа с добавкой соединения металла VI группы Периодической системы (Cr, Mo, W, Se, Te) в процессах пиролиза смеси углеводородного топлива и измельчённых отходов резины в присутствии водорода при давлении 10-30 МПа и температуре 350-500 °C (US Patent 4,251,500; JP Patent 52-125088).

10 Достигаемое при этом некоторое снижение выхода твёрдого остатка и повышение выхода моторного топлива связаны с необходимостью принятия особых мер предосторожности для защиты от пожара и взрыва.

15 Известный из US Patent 5,286,374 катализатор пиролиза отходов резины изготовлен на основе слюды типа мусковита, серицита или биотита. С его использованием удаётся вести процесс пиролиза отработанных шин с металлокордом при избыточном давлении 1,0-2,5 ати и температуре 230-400 °C.

20 Такой катализатор позволяет и без водорода, то есть в существенно более безопасных условиях, получать газообразные углеводороды, широкую гамму жидких топлив, сажу и незначительное количество твёрдого углеродистого остатка преимущественно на кордной проволоке, пригодной для утилизации как металлургическое сырьё.

25 Однако его расход составляет от 2 до 3 % от массы исходной резины, а суммарный выход твёрдых продуктов пиролиза достигает 43 %. При этом сажа, составляющая лишь часть таких продуктов, заметно загрязнена примесью катализатора, что затрудняет её утилизацию.

Из числа известных к предлагаемому по технической сущности наиболее близок катализатор по патенту Украины 10442. Он получен как продукт разложения газообразного оксида углерода над железной окалиной и по существу представляет собой гомогенный железоуглеродный композиционный материал в виде ультрадисперсных частиц железа и микроскопических частиц углерода. Этот катализатор, именуемый далее "железоуглеродный компонент", вносили в углеводородные растворители типа отработанного машинного масла в количестве не менее 0,2 %, а предпочтительно 0,5-1,0 % от его массы, в этой смеси выдерживали отходы резины до её набухания не менее, чем в 1,1 раза, сливали избыток растворителя с примесью указанного катализатора для повторного использования и лишь затем при температуре 150-450 °С, а предпочтительно около 200°С в токе азота проводили пиролиз набухших отходов резины.

Соответственно, удельный расход катализатора в расчёте на массу резины обычно составлял около 0,002-0,005 %. Поэтому практически свободные от примесей твёрдые продукты пиролиза в виде сажи с удельной поверхностью 80-100 м²/г были пригодны для введения в резиновые смеси для изготовления новых резинотехнических изделий по меньшей мере в смеси 50/50 со свежей сажой.

Однако, весь конденсат жидких продуктов пиролиза, полученных при использовании описанного катализатора, представляет собой по существу мазут с температурой начала кипения более 150°С, температурой конца кипения около 400°С и температурой вспышки более 100°С, который содержит более 90 % парафиноподобных углеводородов с длиной цепи выше C₅. Кроме того, при использовании описанного катализатора содержание связанной серы в продуктах пиролиза нередко оказывалось менее 1,0 %. Эти нежелательные результаты обусловлены всё ещё недостаточно высокой ак-

тивностью порошкового катализатора в реакциях разрушения макромолекул, содержащих водород и углерод.

Краткое изложение сущности изобретения

5 Поэтому в основу изобретения положена задача путём усовершенствования состава создать такой более активный катализатор, который в процессах пиролиза углеводородсодержащих полимеров способствовал бы повышению выхода в конденсат легких фракций углеводородов и практически полному связыванию серы в продуктах пиролиза.

10 Поставленная задача решена тем, что катализатор низкотемпературного пиролиза углеводородсодержащих полимерных материалов, содержащий железоуглеродный компонент в виде микроскопических частиц углерода и ультрадисперсных частиц железа, согласно изобретению дополнительно содержит металлоуглеродный компонент, полученный как продукт упаривания и пиролиза дисперсии, содержащей по меньшей мере одну разлагающуюся при нагреве с образованием оксида соль металла VIII группы Периодической системы, который выбран из группы, состоящей из железа, никеля и кобальта, углевод и легколетучий сольвент.

20 Указанный комплексный катализатор в сравнении с катализатором в виде одного лишь железоуглеродного компонента обладает существенно более высокой активностью в процессах низкотемпературного пиролиза углеводородсодержащих полимерных материалов и, в частности, отходов резины в виде шин с металлокордом, что подтверждается:

резким - до 70°C - снижением температуры начала кипения получаемого при пиролизе конденсата;

получением в интервале температур кипения 70-300°C достаточно летучих преимущественно линейных C₃-C₆ и ароматических

углеводородов, смесь которых нередко составляет свыше 50 % от общей массы конденсата;

выходом мазутоподобной фракции от 40 до 45 % от массы конденсата;

5 преобразованием в конденсат до 95-96 % исходной массы полимера,

практически полным химическим связыванием в продуктах пиролиза серы, которая присутствовала в резине, и

10 возможностью получения сажи с удельной поверхностью до 120 м²/г.

Первое дополнительное отличие состоит в том, что железоуглеродный компонент и указанный металлоуглеродный компонент взяты в соотношении (в процентах по массе):

15 железоуглеродный компонент.....70...98
 металлоуглеродный компонент.....2...30

Это позволяет оптимизировать такой существенно влияющий на активность показатель качества катализатора, как удельная поверхность, которая составляет не менее 80 м²/г, а преимущественно находится в интервале 110-120 м²/г.

20 Второе дополнительное отличие состоит в том, что металлоуглеродный компонент получен как продукт упаривания и пиролиза дисперсии, которая, наряду с указанными по меньшей мере одной разлагающейся при нагреве с образованием оксида солью металла VIII группы Периодической системы, выбранного из группы, состоящей из железа, никеля и кобальта, углеводом и легколетучим
25 сольвентом, содержит предварительно полученный железоуглеродный компонент. Полученный таким образом комплексный катализатор характеризуется наибольшей равномерностью распределения железо- и металлоуглеродного компонентов в смеси и потому

обеспечивает повышение выхода конденсата в расчёте на органическую часть резины при температуре пиролиза не более 250°C.

Третье дополнительное отличие состоит в том, что металлоуглеродный компонент является продуктом упаривания и пиролиза дисперсии, содержащей соль железа, углевод и легколетучий соль-
5 вент. Железо в сравнении с иными металлами VIII группы Периодической системы наиболее доступно. Поэтому катализатор согласно изобретению оказывается наиболее приемлемым по затратам на его изготовление для производителей и по цене для потребителей.

Четвёртое дополнительное отличие состоит в том, что металлоуглеродный компонент является продуктом упаривания и пиролиза дисперсии, содержащей соль железа, углевод, выбранный из группы, состоящей из моно- и дисахаридов, и легколетучий соль-
10 вент. Моно- и дисахариды доступны и легко пиролизуются до ультрадисперсной сажи, что позволяет дёшево и эффективно получать металлоуглеродный компонент предложенного катализатора.

Пятое дополнительное отличие состоит в том, что металлоуглеродный компонент является продуктом упаривания и пиролиза дисперсии, содержащей соль железа, водорастворимый высокомолекулярный углевод, выбранный из группы, состоящей из крахмала
20 и водорастворимых эфиров целлюлозы, и воду как легколетучий сольвент. Водная дисперсия, содержащая такие водорастворимые полисахариды, наиболее удобна для получения дешевого металлоуглеродного компонента с высокой концентрацией металла.

Шестое дополнительное отличие состоит в том, что железо и углерод в железоуглеродном компоненте присутствуют в количестве (в моль-процентах):

железо.....1,35...46,15

углерод.....53,85...98,65

Седьмое дополнительное отличие состоит в том, что железо и углерод в металлоуглеродном компоненте присутствуют в количестве (в моль-процентах):

| | | |
|---|--------------|---------------|
| | железо..... | 0,22...2,33 |
| 5 | углерод..... | 97,67...99,78 |

Восьмое дополнительное отличие состоит в том, что железо присутствует в катализаторе в виде частиц с размерами от 50 до 8000Å.

10 Указанные соотношения «железо/углерод» и диапазон допустимых размеров частиц железа способствуют тому, что его существенная часть присутствует в составе катализатора согласно изобретению в виде кластеров, обуславливающих упомянутое повышение активности.

15 Естественно, что формы реализации изобретательского замысла не ограничены указанными выше вариантами и приведенными ниже примерами и что на основе принципиального технического решения, сформулированного в начале характеристики сущности изобретения, могут быть созданы и иные конкретные катализаторы низкотемпературного пиролиза углеводородсодержащих полиме-
20 ров.

Наилучшие варианты осуществления изобретения

25 Далее сущность изобретения поясняется перечнем необходимых исходных материалов и описанием способа изготовления предложенного катализатора, примерами его состава и применения для пиролиза отходов резины в виде отработанных шин с металлокордом и данными об эффективности такого применения.

Катализатор согласно изобретению имеет вид смеси железо- и металлоуглеродного компонентов, которую можно изготовить следующим образом.

Независимо от способа смешивания вначале получают железо-углеродный компонент. Для этого навеску тонкодисперсного оксида или разлагающейся при нагревании до оксида соли железа помещают в тигель и нагревают до температуры от 500 до 600°C. Нагретый оксид железа выдерживают при указанной температуре в потоке СО-содержащего газа с примесью водорода или водородсодержащих компонентов, например, паров воды. При этом происходят:

- а) восстановление и попутное диспергирование железа и
- б) катализируемая ювенильной поверхностью частиц железа так называемая реакция Белла-Будуара $2\text{CO} = \text{CO}_2 + \text{C}$, в ходе которой в виде микроскопических частиц выделяется углерод.

Соотношение «железо/углерод» в пределах (в моль-процентах) 1,35...46,15 для железа и 53,85...98,65 для углерода регулируют длительностью выдержки. Чем она больше, тем меньше мольная доля железа и выше мольная доля углерода в получаемом как полупродукт или промежуточный продукт железоуглеродном компоненте. При чрезмерной выдержке разложение СО самопроизвольно прекращается вследствие диспергирования железа до ультрадисперсных частиц, поверхность которых полностью блокирована микроскопическими частицами углерода, и падения каталитической активности железа в реакции Белла-Будуара практически до нуля.

В полученном железоуглеродном компоненте частицы железа имеют размеры от сотых до десятых долей микрометра, а частицы углерода - от десятых долей микрометра до нескольких десятков микрометров. В качестве следовых примесей железоуглеродный компонент может содержать карбиды железа и кислород, который обычно присутствует в виде вторичных или непрореагировавших оксидов железа и, отчасти, в сорбированном состоянии.

Металлоуглеродный компонент в простейшем случае может быть изготовлен независимо от железоуглеродного компонента. Для этого вначале известным образом, то есть дозированием и смешиванием, которое - при необходимости - может происходить как одновременное или последовательное перетирание доз твёрдых
5 выбранных ингредиентов в жидкой дисперсионной среде, готовят дисперсию, то есть раствор или устойчивую суспензию, которая содержит:

в качестве дисперсной фазы:

- 10 - по меньшей мере одну разлагающуюся при нагреве с образованием оксида соль металла VIII группы Периодической системы, выбранного из группы, состоящей из железа, никеля и кобальта, и
- подходящий углевод-восстановитель, а

15 в качестве дисперсионной среды - легколетучий свободный от возможных каталитических ядов сольвент.

Примерами солей указанного типа могут служить предпочтительно формиаты или ацетаты, а также пропионаты и цитраты железа, кобальта и никеля, хотя специалистам понятно, что не исключено использование иных солей моно-, ди- и трикарбоновых кислот, нитратов и нитритов этих металлов.
20

Примерами углеводов-восстановителей могут служить:

такие моносахариды, как глюкоза, фруктоза и иные альдозы и кетозы;

25 такие дисахариды, как *L*- или *D*-сахароза, мальтоза, лактоза, различные гликозидо-гликозы, гликозидо-альдозы и гликозидо-кетозы;

предпочтительно такие водорастворимые полисахариды или их производные, как растительный крахмал и водорастворимые эфиры целлюлозы типа метил- или карбоксиметилцеллюлозы.

Примерами легколетучих сольвентов могут служить низшие алифатические спирты, с применением которых обычно готовят суспензии (золи), а предпочтительно - дистиллированная вода, с применением которой обычно готовят истинные растворы или гели реагентов, выбранных для изготовления металлоуглеродного компонента катализатора согласно изобретению.

Готовую дисперсию в инертной атмосфере упаривают досуха (возможно под вакуумом и/или при повышенной температуре) и также в инертной атмосфере пиролизуют при ступенчатом нагреве с выдержкой на каждой ступени, а именно:

нагревают сухой остаток до температуры карамелизации в пределах 190-200°C и выдерживают при ней примерно 2 часа для разложения выбранной соли и её частичного преобразования в соответствующий оксид (или смесь оксидов) выбранного металла;

нагревают карамелизованную массу до температуры около 400°C и выдерживают при ней около 1 часа для окончательного преобразования выбранной соли в соответствующий оксид (или смесь оксидов) выбранного металла, пиролиза выбранного углевода до образования микроскопических частиц углерода и начала восстановления оксида (или смеси оксидов) до образования ультрадисперсных частиц металла;

нагревают остаток до температуры в интервале 550-650°C и выдерживают при ней около 1 часа с получением металлоуглеродного компонента, в котором металл (никель, кобальт, а предпочтительно, как и в железоуглеродном компоненте, железо, или смесь всех или некоторых из них) и углерод присутствуют в количестве (в моль-процентах):

металл.....0,22...2,33

углерод.....97,67...99,78.

Соотношение «металл/углерод» в металлоуглеродном компоненте регулируют, изменяя количество источника металла, то есть выбранной соли (или солей) и количество источника углерода, то есть выбранного углевода (а при использовании спиртов в качестве дисперсионной среды - в некоторой степени и выбранного спирта) в 5 приготавливаемой дисперсии.

После охлаждения металлоуглеродный компонент смешивают с полученным ранее железоуглеродным компонентом в требуемом соотношении.

10 Наряду с описанным возможен и иной более предпочтительный способ получения нового катализатора, который предусматривает приготовление формсеси введением предварительно полученного железоуглеродного компонента в дисперсию для приготовления металлоуглеродного компонента и обработку, то есть упаривание и пиролиз, такой формсеси, как указано выше. Этот способ 15 позволяет существенно упростить гомогенизацию смеси и стабилизировать значения удельной поверхности в разных партиях катализатора с одинаковыми соотношениями железо- и металлоуглеродного компонентов. Соответственно, более стабильно протекают процессы пиролиза и стабилизируются состав и качество целевых 20 продуктов переработки отходов резины.

Для определения оптимального соотношения указанных компонентов в новом катализаторе были приготовлены их смеси с разными долями металлоуглеродного компонента в общей массе катализатора и для каждой из них известным специалистам методом 25 была определена удельная поверхность (см. таблицу 1).

Таблица 1

Зависимость удельной поверхности катализатора согласно изобретению от доли металлоуглеродного компонента в его массе

| Доля металлоуглеродного компонента в общей массе катализатора, % | Удельная поверхность катализатора, м ² /г |
|---|---|
| 50 | 30 |
| 40 | 38 |
| 30 | 80 |
| 20 | 96 |
| 10 | 110 |
| 5 | 120 |
| 2 | 100 |
| 1 | 100 |

5

Как видно из таблицы 1, удельная поверхность нового катализатора по мере понижения доли металлоуглеродного компонента в массе смеси вначале скачкообразно возрастает при переходе от соотношения железо- и металлоуглеродного компонентов 60/40 к соотношению 70/30, проходит через максимум при их соотношении 95/5 и далее при соотношении 98/2 понижается и стабилизируется.

10

Поэтому несмотря на общий рост активности катализатора согласно изобретению, который обусловлен использованием металлоуглеродного компонента, желательно, чтобы железо- и металлоуглеродный компоненты присутствовали в смеси в количестве (в процентах по массе):

15

железоуглеродный компонент.....70...98

металлоуглеродный компонент.....2...30.

20

Как показали исследования с помощью электронного микроскопа, железо в готовом катализаторе согласно изобретению присут-

ствуует в виде частиц с размерами от 50 до 8000Å, а преимущественно от 50 до 500Å.

Для проверки эффективности нового катализатора были проведены:

- 5 а) модельные эксперименты по оценке его активности в низкотемпературной пара-орто-конверсии водорода по схеме



б) полупромышленные эксперименты по низкотемпературному пиролизу отходов резины, которые описаны ниже в примерах.

- 10 Эксперименты типа (а) показали, что максимальный (75%) выход *o*-водорода при использовании катализатора согласно изобретению достигается уже при температуре 45-46 °С, тогда как для наиболее активного классического катализатора пара-орто-конверсии H_2 , известного специалистам как "Никель Ренея", аналогичный максимум достигается только около 140°C.

- 15 Новый катализатор проявляет активность даже при отрицательных температурах, а в исследованиях продуктов пара-орто-конверсии H_2 с добавками дейтерия были выявлены молекулы HD, что свидетельствует о разрыве связей в молекулах H_2 с последующим разворотом второго атома в ортоположение. Такая активность нового катализатора связана с особенностями его структуры, в которой роль активных центров играют "комплексы" металл-углерод.

- 20 Эксперименты типа (б) проводили, используя как отходы резины автомобильные шины с металлокордом. Эти шины нарезали поперек на куски шириной около 10 см. Такие куски для набухания резины предварительно замачивали в жидкой смеси углеводородов и катализатора согласно изобретению. Объем этой смеси примерно в три раза превосходил объем кусков шин. После набухания кусков шин не менее, чем в 1,1 раза, их извлекали из смеси углево-

дородов и катализатора, выдерживали на воздухе до стекания капель указанной смеси, переносили в контейнер и в нём подвергали пиролизу в муфельной печи в токе сухого азота, из которого в водоохлаждаемом холодильнике отбирали конденсат для последующего анализа. Слитый с кусков шин остаток смеси углеводородов и катализатора использовали в последующих экспериментах.

Пример 1. Для набухания резины использовали топливный мазут, содержащий 0,5 % по массе катализатора, в котором соотношение железо- и металлоуглеродного компонентов было равно 85/15. Пиролиз проводили при температуре около 400°C в течение 12 часов. Конденсат содержал (в процентах по массе):

| | |
|--|-------|
| лёгкие углеводороды C_3-C_9 | 5,2 |
| летучие ароматические соединения (бензол, толуол)..... | 3,8 |
| маслоподобную смесь углеводородов..... | 91,0. |

При этом в конденсат было переведено 92,0 % от массы органических соединений резины, а сера практически полностью перешла в маслоподобную смесь углеводородов.

Пример 2. Для набухания резины использовали отработанное масло, слитое из картеров автомобильных двигателей, содержащее 0,3 % по массе катализатора, в котором соотношение железо- и металлоуглеродного компонентов было равно 90/10. Пиролиз проводили при температуре около 300°C в течение 12,5 часов. Конденсат содержал (в процентах по массе):

| | |
|--|-------|
| лёгкие углеводороды C_3-C_9 | 7,4 |
| летучие ароматические соединения (бензол, толуол)..... | 11,3 |
| маслоподобную смесь углеводородов..... | 81,3. |

При этом в конденсат было переведено 94,0 % от массы органических соединений резины, а сера, как и в предыдущем случае,

практически полностью перешла в маслоподобную смесь углеводородов.

Пример 3. Для набухания резины использовали смесь, содержащую (в процентах по массе) 90 % отработанного масла, слитого из картеров автомобильных двигателей, и 10 % дизельного топлива с присадкой 0,5 % по отношению к суммарной массе углеводородов катализатора, в котором соотношение железо- и металлоуглеродного компонентов было равно 90/10. Пиролиз проводили при температуре около 250°C в течение 12 часов. Конденсат содержал (в процентах по массе):

| | |
|--|-------|
| лёгкие углеводороды C_3-C_9 | 19,6 |
| летучие ароматические соединения (бензол, толуол)..... | 25,8 |
| маслоподобную смесь углеводородов..... | 54,6. |

При этом в конденсат было переведено 95,0 % от массы органических соединений резины, а сера также практически полностью перешла в маслоподобную смесь углеводородов.

Серия подобных экспериментов без применения и с применением нового катализатора, в котором соотношение железо- и металлоуглеродного компонентов было равно 90/10, при разных температурах пиролиза показала, что при некоторых условиях в конденсат может быть переведено 96 % массы органического компонента набухшей резины (см. таблицу 2).

Таблица 2

Выход конденсата от массы органического компонента набухшей резины при её пиролизе с катализатором согласно изобретению, содержащим 10% металлоуглеродного компонента

5

| Добавка катализатора, | Выход конденсата, | Температура пиролиза, °C |
|-----------------------|-------------------|--------------------------|
| % | % | |
| 0 | 20 | 700 |
| 0.2 | 87 | 350 |
| 0.3 | 94 | 300 |
| 0.5 | 95 | 250 |
| 1.0 | 96 | 250 |

Промышленная применимость

При средних размерах углеродных частиц в десятые доли мкм, а металлических - в сотые доли мкм и удельной поверхности порошкового катализатора около 100 м²/г и более количество необходимой каталитической добавки составляет 0,2-0,5 % от массы органической жидкости для набухания, в которой и происходит предварительная обработка отходов резины. Сочетание набухания с каталитическим действием высокоактивного порошкового катализатора позволяет проводить пиролиз при температурах 250-400°C при нормальном давлении.

10

15

ФОРМУЛА ИЗОБРЕТЕНИЯ

1. Катализатор низкотемпературного пиролиза углеводородсодержащих полимерных материалов, содержащий железоуглеродный компонент в виде микроскопических частиц углерода и ультрадисперсных частиц железа, отличающийся тем, что он дополнительно содержит металлоуглеродный компонент, полученный как продукт упаривания и пиролиза дисперсии, содержащей по меньшей мере одну разлагающуюся при нагреве с образованием оксида соль металла VIII группы Периодической системы, который выбран из группы, состоящей из железа, никеля и кобальта, углевод и легколетучий сольвент.

2. Катализатор по п.1, отличающийся тем, что указанные железоуглеродный и металлоуглеродный компоненты взяты в соотношении (в процентах по массе):

| | |
|----------------------------------|---------|
| железоуглеродный компонент..... | 70...98 |
| металлоуглеродный компонент..... | 2...30 |

3. Катализатор по п.1, или по п.2, отличающийся тем, что металлоуглеродный компонент получен как продукт упаривания и пиролиза дисперсии, которая, наряду с указанными по меньшей мере одной разлагающейся при нагреве с образованием оксида солью металла VIII группы Периодической системы, выбранного из группы, состоящей из железа, никеля и кобальта, углеводом и легколетучим сольвентом, содержит предварительно полученный железоуглеродный компонент.

4. Катализатор по п.1, или по п.2, или по п.3, отличающийся тем, что металлоуглеродный компонент является продуктом упаривания и пиролиза дисперсии, содержащей соль железа, углевод и легколетучий сольвент.

5. Катализатор по п.4, отличающийся тем, что металлоуглеродный компонент является продуктом упаривания и пиролиза дисперсии, содержащей соль железа, углевод, выбранный из группы, состоящей из моно- и дисахаридов, и легколетучий сольвент.

5 6. Катализатор по п.5, отличающийся тем, что металлоуглеродный компонент является продуктом упаривания и пиролиза дисперсии, содержащей соль железа, водорастворимый высокомолекулярный углевод, выбранный из группы, состоящей из крахмала и водорастворимых эфиров целлюлозы, и воду как легколетучий
10 сольвент.

7. Катализатор по п.6, отличающийся тем, что железо и углерод в железоуглеродном компоненте присутствуют в количестве (в моль-процентах):

 железо.....1,35...46,15
15 углерод.....53,85...98,65

8. Катализатор по п.4, отличающийся тем, что железо и углерод в металлоуглеродном компоненте присутствуют в количестве (в моль-процентах):

 железо.....0,22...2,33
20 углерод.....97,67...99,78

9. Катализатор по п.1, отличающийся тем, что железо присутствует в нём в виде частиц с размерами от 50 до 8000Å.

РСТВСЕМИРНАЯ ОРГАНИЗАЦИЯ
ИНТЕЛЛЕКТУАЛЬНОЙ СОБСТВЕННОСТИ
Международное бюроМЕЖДУНАРОДНАЯ ЗАЯВКА, ОПУБЛИКОВАННАЯ В СООТВЕТСТВИИ
С ДОГОВОРом О ПАТЕНТНОЙ КООПЕРАЦИИ (РСТ)

| | | |
|---|-----------|---|
| (51) Международная классификация изобретения⁶: C10G 1/10 | A3 | (11) Номер международной публикации: WO 00/15403 (43) Дата международной публикации: 23 марта 2000 (23.03.00) |
| (21) Номер международной заявки: PCT/UA99/00017 (22) Дата международной подачи: 25 августа 1999 (25.08.99) (30) Данные о приоритете: 98094786 11 сентября 1998 (11.09.98) UA (71)(72) Заявители и изобретатели: ПРИЛУЦКИЙ Эммануил Вольфович [UA/UA]; 252142 Киев, ул. Семашко, д. 17, кв. 8 (UA) [PRILUTSKY, Emmanuil Volfovich, Kiev (UA)]. ПРИЛУЦКИЙ Олег Вольфович [UA/UA]; 252142 Киев, ул. Семашко, д. 17, кв. 8 (UA) [PRILUTSKY, Oleg Volfovich, Kiev (UA)]. (74) Агент: КУЦЕВИЧ Валерий Людвинович; 254201 Киев, ул. Полярная, д. 13, кв. 81 (UA) [KUTSEVICH, Valery Ljudvikovich, Kiev (UA)]. | | (81) Указанные государства: AL, AM, AT, AU, AZ, BA, BB, BG, BR, BY, CA, CH, CN, CU, CZ, DE, DK, EE, ES, FI, GB, GE, GH, GM, HU, ID, IL, IN, IS, JP, KE, KG, KP, KR, KZ, LC, LK, LR, LS, LT, LU, LV, MD, MG, MK, MN, MW, MX, NO, NZ, PL, PT, RO, RU, SD, SE, SG, SI, SK, SL, TJ, TM, TR, TT, UA, UG, US, UZ, VN, YU, ZW, евразийский патент (AM, AZ, BY, KG, KZ, MD, RU, TJ, TM), европейский патент (AT, BE, CH, CY, DE, DK, ES, FI, FR, GB, GR, IE, IT, LU, MC, NL, PT, SE), патент ARIPO (GH, GM, KE, LS, MW, SD, SL, SZ, UG, ZW), патент OAPI (BF, BJ, CF, CG, CI, CM, GA, GN, GW, ML, MR, NE, SN, TD, TG). Опубликована <i>С отчетом о международном поиске.</i> (88) Дата публикации отчёта о международном поиске: 25 мая 2000 (25.05.00) |
| (54) Title: CATALYST FOR THE LOW-TEMPERATURE PYROLYSIS OF HYDROCARBON-CONTAINING POLYMER MATERIALS (54) Название изобретения: КАТАЛИЗАТОР НИЗКОТЕМПЕРАТУРНОГО ПИРОЛИЗА УГЛЕВОДОРОДОС-ДЕРЖАЩИХ ПОЛИМЕРНЫХ МАТЕРИАЛОВ (57) Abstract The present invention relates to a catalyst used in the low-temperature pyrolysis of hydrocarbon-containing polymer materials, said catalyst being mainly intended for use in the recycling of rubber waste materials. The catalyst is prepared from a carbon-iron component in the form of microscopic carbon particles and ultra-dispersed iron particles. In order to increase the yield of light hydrocarbon fractions in the condensate and to bind substantially completely the sulphur in the products of the rubber pyrolysis, the catalyst further contains a metal-carbon component. This component consists of the product from the stripping and the pyrolysis of a dispersion that comprises at least one salt of a metal from the group VIII in the periodic table which is capable of decay upon heating in order to form an oxide, wherein said metal is selected from the group comprising iron, nickel and cobalt. The dispersion further includes a carbohydrate as well as a highly volatile solvent. | | |

BEST AVAILABLE COPY

КАТАЛИЗАТОР НИЗКОТЕМПЕРАТУРНОГО ПИРОЛИЗА УГЛЕВОДОРОДСОДЕРЖАЩИХ ПОЛИМЕРНЫХ МАТЕРИАЛОВ предназначен преимущественно для переработки отходов резины. Он изготовлен на основе железоуглеродного компонента в виде микроскопических частиц углерода и ультрадисперсных частиц железа. Для повышения выхода в конденсат легких фракций углеводородов и практически полного связывания серы в продуктах пиролиза резины катализатор дополнительно содержит металлоуглеродный компонент, полученный как продукт упаривания и пиролиза дисперсии, содержащей по меньшей мере одну разлагающуюся при нагреве с образованием оксида соль металла VIII группы Периодической системы, который выбран из группы, состоящей из железа, никеля и кобальта, углевод и легколетучий сольвент.

ИСКЛЮЧИТЕЛЬНО ДЛЯ ЦЕЛЕЙ ИНФОРМАЦИИ

Коды, используемые для обозначения стран-членов РСТ на титульных листах брошюр, в которых публикуются международные заявки в соответствии с РСТ.

| | | | | | |
|----|-----------------------------------|----|--|----|---------------------------|
| AL | Албания | GE | Грузия | MR | Мавритания |
| AM | Армения | GH | Гана | MW | Малави |
| AT | Австрия | GN | Гвинея | MX | Мексика |
| AU | Австралия | GR | Греция | NE | Нигер |
| AZ | Азербайджан | HU | Венгрия | NL | Нидерланды |
| BA | Босния и Герцеговина | IE | Ирландия | NO | Норвегия |
| BB | Барбадос | IL | Израиль | NZ | Новая Зеландия |
| BE | Бельгия | IS | Исландия | PL | Польша |
| BF | Буркина-Фасо | IT | Италия | PT | Португалия |
| BG | Болгария | JP | Япония | RO | Румыния |
| BJ | Бенин | KE | Кения | RU | Российская Федерация |
| BR | Бразилия | KG | Киргизстан | SD | Судан |
| BY | Беларусь | KP | Корейская Народно-Демократическая Республика | SE | Швеция |
| CA | Канада | KR | Республика Корея | SG | Сингапур |
| CF | Центрально-Африканская Республика | KZ | Казахстан | SI | Словения |
| CG | Конго | LC | Сент-Люсия | SK | Словакия |
| CH | Швейцария | LI | Лихтенштейн | SN | Сенегал |
| CI | Кот-д'Ивуар | LK | Шри-Ланка | SZ | Свазиленд |
| CM | Камерун | LR | Либерия | TD | Чад |
| CN | Китай | LS | Лесото | TG | Того |
| CU | Куба | LT | Литва | TJ | Таджикистан |
| CZ | Чешская Республика | LU | Люксембург | TM | Туркменистан |
| DE | Германия | LV | Латвия | TR | Турция |
| DK | Дания | MC | Монако | TT | Тринидад и Тобаго |
| EE | Эстония | MD | Республика Молдова | UA | Украина |
| ES | Испания | MG | Мадагаскар | UG | Уганда |
| FI | Финляндия | MK | Бывшая югославская Республика Македония | US | Соединенные Штаты Америки |
| FR | Франция | ML | Мали | UZ | Узбекистан |
| GA | Габон | MN | Монголия | VN | Вьетнам |
| GB | Великобритания | | | YU | Югославия |
| | | | | ZW | Зимбабве |

ДОГОВОР О ПАТЕНТНОЙ КООПЕРАЦИИ
PCT

ОТЧЕТ О МЕЖДУНАРОДНОМ ПОИСКЕ
(статья 18 и правила 43 и 44 PCT)

| | | |
|---|---|--|
| № дела заявителя: - | Для дальнейших действий см. уведомление о пересылке отчета о международном поиске (форма PCT/ISA/220) и, если применимо, пункт 5 ниже. | |
| Международная заявка № PCT/UA 99/00017 | Дата международной подачи: 25 августа 1999 (25.08.99) | Самая ранняя дата приоритета: 11 сентября 1998 (11.09.98) |
| Заявитель ПРИЛУЦКИЙ Эммануил Вольфович и др. | | |

Настоящий отчет о международном поиске, подготовленный данным Международным поисковым органом, направлен заявителю в соответствии со статьей 18 PCT. Копия отчета направлена в Международное бюро.

Настоящий отчет о международном поиске состоит из 2 листов

☒ К нему прилагаются копии всех ссылочных документов, указанных в отчете.

1. Основа отчета

a. В части языка международный поиск подготовлен на основе международной заявки на языке, на котором она была подана, если иное не указано ниже.

☐ международный поиск подготовлен на основе перевода международной заявки, представленного в данный Орган (правило 23.1(b)).

b. В части последовательности нуклеотидов и/или аминокислот, раскрытых в международной заявке, международный поиск подготовлен на основе перечня последовательностей:

- ☐ содержащегося в международной заявке в машинописной форме.
- ☐ поданного вместе с международной заявкой в машиночитаемой форме.
- ☐ представленного впоследствии в данный Орган в машинописной форме.
- ☐ представленного впоследствии в данный Орган в машиночитаемой форме.
- ☐ заявление, что впоследствии представленный перечень последовательностей не выходит за рамки раскрытия в международной заявке, как она была первоначально подана.
- ☐ заявление, что информация, записанная в машиночитаемой форме, идентична перечню последовательностей, представленному в машинописном виде.

2. ☐ Некоторые пункты формулы не подлежат поиску (см. графу I)

3. ☐ Единство изобретения не соблюдено (см. графу II)

4. В части названия,

- ☒ принят текст, представленный заявителем
- ☐ данным Органом установлен следующий текст:

5. В части реферата,

- ☒ принят текст, представленный заявителем
- ☐ данным Органом установлен, согласно правилу 38.2(b), текст, приведенный в графе III. Заявитель может в месячный срок с даты отправки настоящего отчета о поиске представить свои комментарии данному Органу.

6. С рефератом будет опубликована фигура чертежей: -

- ☐ как предложено заявителем
 - ☐ так как заявитель не указал фигуры
 - ☐ так как данная фигура лучше характеризует изобретение
- ☒ ни одна из фигур

ОТЧЕТ О МЕЖДУНАРОДНОМ ПОИСКЕ

Международная заявка №

PCT/UA 99/00017

A. КЛАССИФИКАЦИЯ ПРЕДМЕТА ИЗОБРЕТЕНИЯ:

C10G 1/10

Согласно международной патентной классификации (МПК-6)

B. ОБЛАСТИ ПОИСКА:

Проверенный минимум документации (система классификации и индексы) МПК-6:

B01J 21/18, B01J 23/74, B29B 17/00, C08J 11/04, 11/18, 11/20, C10G 1/10, C10B 53/00

Другая проверенная документация в той мере, в какой она включена в поисковые подборки:

Электронная база данных, использовавшаяся при поиске (название базы и, если, возможно, поисковые термины):

C. ДОКУМЕНТЫ, СЧИТАЮЩИЕСЯ РЕЛЕВАНТНЫМИ:

| Категория* | Ссылки на документы с указанием, где это возможно, релевантных частей | Относится к пункту № |
|------------|---|----------------------|
| A | SU 1698258 A1 (ИНСТИТУТ ВЫСОКИХ ТЕМПЕРАТУР АН СССР) 15.12.91 | 1-9 |
| A | EP 0863197 A1 (XING, LI) 09.09.1998 | 1-9 |
| A | EP 0535253 A1 (FULL BORN CHEN INDUSTRIAL CO., LTD.) 07.04.93 | 1-9 |
| A | EP 0612 828 A1 (CHEN, HUANG-CHUAN) 31.08.94 | 1-9 |

☐ последующие документы указаны в продолжении графы C. ☐ данные о патентах-аналогах указаны в приложении

* Особые категории ссылочных документов:

A документ, определяющий общий уровень техники

E более ранний документ, но опубликованный на дату международной подачи или после нее

O документ, относящийся к устному раскрытию, экспонированию и т.д.

P документ, опубликованный до даты международной подачи, но после даты испрашиваемого приоритета и т.д.

T более поздний документ, опубликованный после даты приоритета и приведенный для понимания изобретения

X документ, имеющий наиболее близкое отношение к предмету поиска, порочащий новизну и изобретательский уровень

Y документ, порочащий изобретательский уровень в сочетании с одним или несколькими документами той же категории

& документ, являющийся патентом-аналогом

Дата действительного завершения международного поиска: 17 декабря 1999 (17.12.99)

Дата отправки настоящего отчета о международном поиске: 13 января 2000 (13.01.2000)

Наименование и адрес Международного поискового органа:
Федеральный институт промышленной собственности

Россия, 121858, Москва, Бережковская наб., 30-1
Факс: 243-3337, телетайп: 114818 ПОДАЧА

Уполномоченное лицо:

Л.Реутова

Телефон № (095)240-25-91

Форма PCT/ISA/210 (второй лист)(июль 1998)

INTERNATIONAL SEARCH REPORT

International application No.
PCT/UA 99/00017

A. CLASSIFICATION OF SUBJECT MATTER
(IPC.6) C10G 1/10

According to International Patent Classification (IPC) or to both national classification and IPC

B. FIELDS SEARCHED

Minimum documentation searched (classification system followed by classification symbols)
(IPC.6) B01J 21/18, 23/74, B29B 17/00, C08J 11/04, 11/18, 11/20, C10G 1/10,
C10B 53/00

Documentation searched other than minimum documentation to the extent that such documents are included in the fields searched

Electronic data base consulted during the international search (name of data base and, where practicable, search terms used)

C. DOCUMENTS CONSIDERED TO BE RELEVANT

| Category* | Citation of document, with indication, where appropriate, of the relevant passages | Relevant to claim No. |
|-----------|--|-----------------------|
| A | SU 1698258 A1 (INSTITUT VYSOKIKH TEMPERATUR AN SSSR 15 December 1991 (15.12.91) | 1-9 |
| A | EP 0863197 A1 (XING, LI) 9 September 1998 (09.09.98) | 1-9 |
| A | EP 0535253 A1 (FULL BORN CHEN INDUSTRIAL CO. LTD.) 7 April 1993 (07.04.93) | 1-9 |
| A | EP 0612828 A1 (CHEN, HUANG-CHUAN) 31 August 1994 (31.08.94) | 1-9 |

☐ Further documents are listed in the continuation of Box C. ☐ See patent family annex.

| | |
|---|--|
| * Special categories of cited documents: | "T" later document published after the international filing date or priority date and not in conflict with the application but cited to understand the principle or theory underlying the invention |
| "A" document defining the general state of the art which is not considered to be of particular relevance | "X" document of particular relevance; the claimed invention cannot be considered novel or cannot be considered to involve an inventive step when the document is taken alone |
| "E" earlier document but published on or after the international filing date | "Y" document of particular relevance; the claimed invention cannot be considered to involve an inventive step when the document is combined with one or more other such documents, such combination being obvious to a person skilled in the art |
| "L" document which may throw doubts on priority claim(s) or which is cited to establish the publication date of another citation or other special reason (as specified) | "&" document member of the same patent family |
| "O" document referring to an oral disclosure, use, exhibition or other means | |
| "P" document published prior to the international filing date but later than the priority date claimed | |

| | |
|--|--|
| Date of the actual completion of the international search 17 December 1999 (17.12.99) | Date of mailing of the international search report 13 January 2000 (13.01.00) |
| Name and mailing address of the ISA/RU | Authorized officer |
| Facsimile No. | Telephone No. |